

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-185875

(43)Date of publication of application : 16.07.1996

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 06-339776

(71)Applicant : TOKYO GAS CO LTD

(22)Date of filing : 28.12.1994

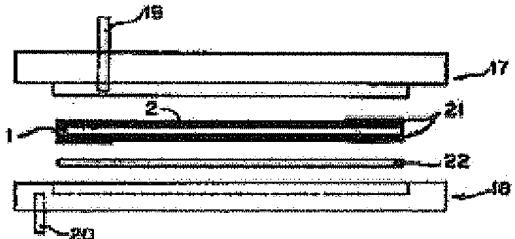
(72)Inventor : SEKI TSUTOMU

## (54) SEALING METHOD FOR SOLID HIGH MOLECULAR FUEL CELL

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide the proper effectiveness of a seal by pressing a separator under the specified heating condition without drying a solid high molecular electrolytic film in bonding and integrating the separator therewith by use of an adhesive.

**CONSTITUTION:** An adhesive is applied to the surface of a high molecular electrolytic film 1 or a separator 22, and both are set between upper and lower dies 17 and 18. Then, heat is indirectly applied thereto by use of steam under pressure. In this case, steam is condensed into hot water during an operation, and this condensation heat is used to maintain hot water temperature equal to or above 100° C under pressure. Then, a pressing process is carried out at the hot water temperature. According to this construction, the electrolytic film 1 becomes free from stress at the time of power generation, and power can be safely generated.



**\* NOTICES \***

**JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1]By pressing under application of pressure under the degree of water temperature with a temperature of not less than 100 \*\*, without drying this solid polyelectrolyte membrane in joining a separator to solid polyelectrolyte membrane with adhesives, and unifying, A seal method of a polymer electrolyte fuel cell carrying out uniting making solid polyelectrolyte membrane into a moisture state.

[Claim 2]A seal method of the polymer electrolyte fuel cell according to claim 1 whose above-mentioned solid polyelectrolyte membrane is a film of a perfluorocarbon-sulfonic-acid resin system.

[Claim 3]A seal method of the polymer electrolyte fuel cell according to claim 1 or 2 which is a conductive metal in which the above-mentioned separator has corrosion resistance to acid electrolytes, such as a product made from stainless steel which coated with a product made from carbon, or the precious metals.

[Claim 4]A seal method of the polymer electrolyte fuel cell according to claim 1, 2, or 3 whose above-mentioned adhesives are thermosetting resin.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

**[Detailed Description of the Invention]****[0001]**

[Industrial Application] This invention more specifically makes the gas seal of the solid polyelectrolyte membrane of a polymer electrolyte fuel cell, and a separator easily and reliable about the seal method of a polymer electrolyte fuel cell. It is related with the seal method of the polymer electrolyte fuel cell which can raise the safety of a polymer electrolyte fuel cell effectively.

**[0002]**

[Description of the Prior Art] Although a polymer electrolyte fuel cell has the feature at the point which an ion conductor, i.e., an electrolyte, is a solid, and is Polymer Division, As the solid polymer electrolyte, films, such as ion-exchange resin, are specifically used, arranging the two electrodes of a negative electrode (anode) and an anode (cathode) on both sides of this polymer electrolyte membrane -- for example, the negative-electrode side -- hydrogen gas as fuel -- the electrical and electric equipment is generated by supplying oxygen or air to the anode side, and making electrochemical reaction cause.

[0003] Although there is a thing of various modes in this device, drawing 1 is a schematic diagram for explaining the principle of this polymer electrolyte fuel cell, or one mode. As for one, a cathode terminal (anode) and 3 are anode electrodes (negative electrode) polymer electrolyte membrane and 2 among drawing 1, and the polymer electrolyte membrane 1 is arranged between these positive/negative two electrodes 2 and 3 that face. 4 is the cathode terminal side charge collector, 5 is the anode electrode side charge collector, and it is contacted by the electrodes 2 and 3 of positive/negative, respectively. Among these, the slot for oxygen or air supply is established in the electrode 2 side of the cathode terminal side charge collector 4, the same slot for hydrogen supplies in the electrode 3 side of the anode electrode side charge collector 5 is provided, the slot of the anode side charge collector 4 is open for free passage to oxygen or the air feed pipe 6, and the slot of the negative-electrode side charge collector 5 is open for free passage in the hydrogen supply pipe 7.

[0004] It is the cathode tag block in which 8 was provided in contact with the anode side charge collector 4, and the anode tag block in which 9 was provided in contact with the negative-electrode side charge collector 5, and electric power is taken out through these during the operation of a cell. Upper frame, i.e., an upper frame, and 11 are lower frames, i.e., a lower frame, 10. The cell proper (this term "cell proper" is used also as what points out what unified the electrode in contact with the electrolyte membrane as below-mentioned) from the polymer electrolyte membrane 1 to the cathode tag block 8 and the anode tag block 9 is covered by these up-and-down both the frames 10 and 11, and it is being fixed.

[0005] Among these up-and-down both the frames 10 and 11, enclose the edge part of the cell proper from the polymer electrolyte membrane 1 to the cathode tag block 8 and the anode tag block 9, and the packing (gasket) 12 is formed. By this, it fixes densely, the seal of the edge part of the cell proper is carried out, and the gas seal is carried out especially to the polymer electrolyte membrane 1 and the positive/negative two electrodes 2 and 3. 13 and 14 are cooling water supply pipes among drawing 1, and these are open for free passage into the slot (closed

passage) established in the inner surface of the upper frame 10 and the lower frame 11, respectively, and are indirectly cooled from the back of the cathode tag block 8, and the back of the anode tag block 9.

[0006]The above is when a cell proper is single, but accumulating and constituting these two or more cells proper is also performed. In this case, although it is necessary to make a separator (spacer) intervene between each two or more cells proper, and to establish the slot for cooling water, etc. also in this suitably, enclosing the edge part (periphery) of a cell proper, forming packing, fixing densely, carrying out the seal of the edge part of the cell proper, and including carrying out a gas seal to the polymer electrolyte membrane 1 and the positive/negative two electrodes 2 and 3 etc. -- fundamental -- \*\*\*\* -- it is the same as the case of a single cell proper. In this case, in addition to up-and-down both the frames 10 and 11, bolting of packing etc. is performed also via the above-mentioned separator.

[0007]the above-mentioned -- the case where a single cell proper and these two cells proper or more are accumulated and constituted -- that edge part (periphery) -- dense -- especially -- gas -- it is necessary to carry out a seal densely The technique of making \*\* O ring which packing is made to be placed between the circumferences of polymer electrolyte membrane, and is stuck to them as the method of the seal as \*\* above-mentioned intervene, and sticking it by this is used and proposed.

[0008]However, in order to ensure the adhesion by these techniques, each needs to press these packing or an O ring strongly, but. For this reason, bolting more than needed also becomes performed also to the above-mentioned cell proper, and it not only damages the polymer electrolyte membrane itself which these contact, but polymer electrolyte membrane. Usually, there is character expanded and contracted by temperature or the existence of humidification, and since a burden is easily placed on a seal part by this, even though it takes which seal techniques, such as the above-mentioned \*\* and \*\*, it is necessary to also consider this point enough.

[0009]this invention person fixes and does the seal of the edge part of the cell proper in view of the above many points, It hits carrying out a gas seal to the polymer electrolyte membrane 1 and the two electrodes 2 and 3 of positive/negative, The above-mentioned problem in the technique between which such packing and an O ring are made to be placed is solved at once, The seal method for having the advantage which is fully being able to carry out a seal only by pressing down polymer electrolyte membrane lightly, and damaging the polymer electrolyte membrane itself by this and which was excellent in that there is nothing etc. was developed previously, and is proposed (Tokuganhei6-309936).

[0010]In the invention concerning the above-mentioned development and a proposal, the seal of a polymer electrolyte fuel cell, Although it carries out by joining beforehand the polymer electrolyte membrane of a polymer electrolyte fuel cell, and packing (gasket) and packing which carried out the surface treatment with sandblasting beforehand preferably, and attached fine unevenness with adhesives, and unifying, Drawing 2 (a) shows the polymer electrolyte membrane which unified packing obtained above, and drawing 2 (b) shows the structure of the cell proper which joined the gas diffusion electrode to the packing unification polymer electrolyte membrane.

[0011]Among drawing 2, although arrangement of the polymer electrolyte membrane 1 and the positive/negative two electrodes 2 and 3 is the same as the case of drawing 1, water-repelling carbon paper constitutes the gas diffusion layer 15, for example, and, as for the electrodes 2 and 3 obtained above, the sedimentary layers of a catalyst particle form the catalyst bed 16. For this reason, both the two electrodes 2 and 3 are joined so that the catalyst bed 16 side may contact a polymer-electrolyte-membrane side.

Thereby, the gas seal between an electrolyte membrane and packing can be made easily and reliable.

Rather than before, it can fully carry out a seal only by pressing down a film lightly, and, for this reason, it not only can raise the safety of a fuel cell by this, but can reduce damage to an electrolyte membrane substantially.

[0012]By the way, to laminate two or more cells proper and constitute a cell, it is necessary to

make a separator intervene among both cells proper, and to carry out the seal of the periphery, and, As above-mentioned, this seal encloses the edge part (periphery) of a cell proper, and forms packing. It fixes densely and the seal of the edge part of that cell proper is carried out, it is required to carry out a gas seal to the polymer electrolyte membrane 1 and the positive/negative two electrodes 2 and 3, and, in addition to up-and-down both the frames 10 and 11, bolting of this packing is performed also via the above-mentioned separator.

[0013]However, as for a seal, it is surely insufficient to just merely bind tight via packing or an O ring in this case such. As the way method for avoiding this, it is [ polymer electrolyte membrane and packing ] desirable to paste up a separator on the beforehand unified thing and to unite with it with adhesives, further, and them as this technique, Adhesives were applied to the former, for example, a separator, and after making this contact the dry polymer electrolyte membrane, it had joined with the hotpress in the temperature of about 100 \*\*.

[0014]However, in this technique, at the time of that hotpress polymer electrolyte membrane, Since it is dry in itself, when humidifying by setting as a fuel cell like drawing 1 and starting this, Polymer electrolyte membrane became different size from the beginning, and it had the danger of calling it breakage of the cell by expansion of the film at the time of power generation for this reason, and there was a problem also in deterioration of the film by heating at the time of a hotpress.

[0015]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]Then, this invention the polymer electrolyte membrane and the separator of a polymer electrolyte fuel cell, By pasting both up on whether it is direct with adhesives, and unifying, without making packing (gasket) intervene between them as mentioned above, are made to be made to perform a seal and the adhesion unification is faced, The seal method of a polymer electrolyte fuel cell as becomes unable to perform the seal still more effectively and certainly is provided without drying polymer electrolyte membrane.

[0016]

[Means for Solving the Problem]This invention by pressing under application of pressure under the degree of water temperature with a temperature of not less than 100 \*\*, without drying this solid polyelectrolyte membrane in carrying out uniting of the separator to solid polyelectrolyte membrane with adhesives, A seal method of a polymer electrolyte fuel cell carrying out uniting making solid polyelectrolyte membrane into a moisture state is provided.

[0017]Thus, in this invention, although the contact unification of the separator is carried out with adhesives at polymer electrolyte membrane, as construction material of the above-mentioned separator, boards etc. of metal which has corrosion resistance to an acid electrolyte, such as a stainless steel plate which coated with a product made from carbon and the precious metals preferably, can be used. If it pastes up densely and the gas seal of a separator and the packing can be carried out as the above-mentioned adhesives, it can be used, but at ordinary temperature, it is liquefied, and hardens under the degree of water temperature with an above-mentioned temperature of not less than 100 \*\*, and what may be pasted up is used. As this example, it consists of thermosetting resin, such as phenol resin, amino resin, and an epoxy resin, preferably, and adhesives prepared so that it might have adhesives provided with those temperature characteristics or these temperature characteristics can be mentioned.

[0018]moreover — as the above-mentioned polymer electrolyte membrane — the kind — although all are applicable regardless of how, a resin layer of a perfluorocarbon-sulfonic-acid system can be preferably used from the outstanding characteristic. In addition to that outstanding electrical property, this film is chemically and physical very stable, A mechanical strength is also large, it is used as a film about 50–200 micrometers thick, and this thickness is also known as a material provided with the outstanding characteristic — electrical resistance per unit area is so small that the causes with main internal resistance of a cell cannot become at about 0.1–0.5ohm.

[0019]By pressing under application of pressure under the degree of water temperature with a temperature of not less than 100 \*\*, without facing contacting and joining a separator to solid polyelectrolyte membrane, and drying this solid polyelectrolyte membrane in this invention, as above-mentioned, Although characterized by carrying out uniting, making solid polyelectrolyte

membrane into a moisture state, drawing 3 is a mimetic diagram showing theoretically a mode which carries this out.

[0020] Among drawing 3, 17, the Shimokane type, and 19 and 20 are steam introducing pipes, and, as for an upper mold and 18, a steam is supplied in up-and-down both metallic molds via these steam introducing pipes 19 and 20. 21 is the adhesives beforehand applied to the polymer electrolyte membrane 1, and 22 is a separator which is going to carry out uniting to the adhesives 21. Even if the adhesives 21 may be beforehand applied to the separator 22 and it applies them to both sides of the polymer electrolyte membrane 1 and the separator 22, they do not interfere.

[0021] Adhesives are applied to a field of that polymer electrolyte membrane 1, and/or a field of the separator 22 on the occasion of this unification processing, and subsequently, as a graphic display, these are set between the up-and-down metallic molds 17 and 18, and it heats indirectly with the above-mentioned steam, putting a pressure from one side or both sides of both the metallic molds 17 and 18. In drawing 3, although only one separator (the inside of a figure, 22) is shown under the polymer electrolyte membrane 1, it can be arranged also on the upper surface and can also carry out uniting of the separator of a couple simultaneously. When it constitutes a cell from two or more polymer electrolyte membrane, of course, uniting of the separator can also be simultaneously carried out also between two or more of the polymer electrolyte membrane and/or to its topmost part side (and bottom side).

[0022] The above-mentioned steam is condensed at the time of that operation, serves as hot water, and it can be maintained by using that heat of condensation, without exceeding substantially temperature of hot water, i.e., 100 \*\*, or this temperature as that cooking temperature. It does not interfere, even if it supplies hot water which was replaced with the above-mentioned steam and heated to temperature of 100 \*\*, or its neighborhood as that source of heating, and the above-mentioned steam introducing pipes 22 and 23 consist of this inventions as a lead pipe for hot water supply in this case. Junction to a separator can be completed in this invention, considering it as a wet film of a state, i.e., a moisture state, without drying polymer electrolyte membrane by this.

[0023] In this point and a conventional method, since uniting was carried out after drying that film, that polymer electrolyte membrane will become different size from the time of power generation, and it had the danger of calling it breakage of a cell by expansion of a film at the time of power generation for this reason, and there was a problem also in deterioration of a film by heating. According to this invention, since these faults can be solved at once and there is also no stress of a film at the time of power generation by this by carrying out uniting by a moisture state, without drying polymer electrolyte membrane, it makes it possible to perform safer power generation.

[0024] Next, if the outline is described about one mode of a seal method concerning this invention, (1) First wash an adhesion side of separators, such as a product made from stainless steel which coated with a product made from carbon, or the precious metals, and apply heat cure type adhesive resin (thermosetting resin, for example, TSE322, the Toshiba Silicone make, trade name) to the cleaning surface. (2) After carrying out water to polymer electrolyte membrane enough, as an adhesion side of a separator touches, put in in an up-and-down metallic mold for a press as shown in drawing 3. (3) This is inserted with up-and-down both metallic molds, press by a pressure about 100 to 200 kg/cm<sup>2</sup> grade, introduce water (hot water) heated in temperature of 100 \*\* in a metallic mold, and join a separator to a film. (4) In this way, assemble an obtained cell proper like drawing 1, set it, and obtain a fuel cell.

[0025]

[Example] Although working example of this invention is described hereafter, of course, this invention is not what is limited to this working example. \*\* First, as polymer electrolyte membrane, NAFION-117 80-micrometer-thick film (a perfluorocarbon-sulfonic-acid resin layer, the product made by Du Pont, a trade name) was used, and the gas diffusion electrode was joined to both sides of the film. This gas diffusion electrode the porosity of 80%, and 0.4 mm in thickness of carbon paper on the carbon paper made water-repellent by the dispersion of the

tetrafluoroethylene hexafluoropropylene copolymer, The suspension which added the dispersion of polytetrafluoroethylene to the catalyst particle (carrier: carbon) which made 50 % of the weight of platinum with which it coats with the alcohol solution of perfluorocarbon-sulfonic-acid resin support is made to deposit, and it produces.

[0026]\*\* On the other hand, using the separators of ten loess steel with which it coated with platinum beforehand as a separator, the adhesion side was washed and TSE322 (thermosetting resin, the Toshiba Silicone make, trade name) was applied to the cleaning surface. \*\* After ranking second and fully carrying out the water of the NAFION-117 above-mentioned film, as the adhesion side of the above-mentioned separator contacted the packing surface by which uniting was beforehand carried out to this NAFION-117 film, it put in in the up-and-down metallic mold for a press as shown in drawing 3. \*\* This was inserted with up-and-down both the metallic mold, it pressed by pressure [ of 150kg/cm ] <sup>2</sup>, the hot water heated in temperature of 100 \*\* was introduced in the metallic mold, the separator was joined to the film via the above-mentioned packing, and the polymer-electrolyte-membrane-separator zygote was obtained.

[0027]\*\* After that, with the conventional method, a charge collector, a tag block, etc. were stuck to the above-mentioned polymer-electrolyte-membrane-separator zygote, the entrance of hydrogen and oxygen, etc. were installed, it set as a polymer electrolyte fuel cell like drawing 1, and change of the performance as the electrode characteristic and a cell was measured. The cell was produced like the case of working example except [ all ] having made it join by dryness like before rather than having, faced joining a separator to polymer electrolyte membrane as a cell for comparative examples on the other hand and joining polymer electrolyte membrane as a moisture state like this invention.

[0028]Although both showed almost equivalent battery capacity, by the working example cell, troubles, such as membrane failure, were not produced to having produced at a rate of 30% in the conventional method, while membranous breakage etc. generated electricity. Even if it carried out this point and the same examination 10 times, it was completely the same. the electrolyte membrane side after a seal -- viewing -- \*\*\*\*\* and time -- this example -- \*\* -- \*\*\* -- the damage to membranous was not accepted after the demolition.

[0029]

[Effect of the Invention]According to the seal method concerning this invention, since the electrolyte membrane is joined by the moisture state to the separator, there is also no stress of the film at the time of power generation, and this can perform safer power generation. the seal between an electrolyte membrane and a separator -- a gas seal can be made easily and reliable above all, damage to an electrolyte membrane can be reduced substantially, and the safety of a fuel cell can be raised.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

**[Brief Description of the Drawings]**

[Drawing 1]The schematic diagram for explaining one mode of a polymer electrolyte fuel cell.

[Drawing 2]The figure showing the structure of the fuel cell body which joined the \*\* SU diffusion electrode to the polymer electrolyte membrane and this which unified packing.

[Drawing 3]The mimetic diagram of the device used for operation of this invention method.

**[Description of Notations]**

- 1 Polymer electrolyte membrane
- 2 Cathode terminal (anode)
- 3 Anode electrode (negative electrode)
- 4 and 5 Charge collector
- 6 Air feed pipe
- 7 Hydrogen supply pipe
- 8 and 9 Tag block
- 10 Upper frame (upper frame)
- 11 Lower frame (lower frame)
- 12 Packing
- 13 and 14 Cooling water supply pipe
- 15 Gas diffusion layer
- 16 Catalyst bed
- 17 and 18 Metallic mold
- 19 and 20 Steam or introducing pipe of hot water
- 21 Adhesives
- 22 Separator

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

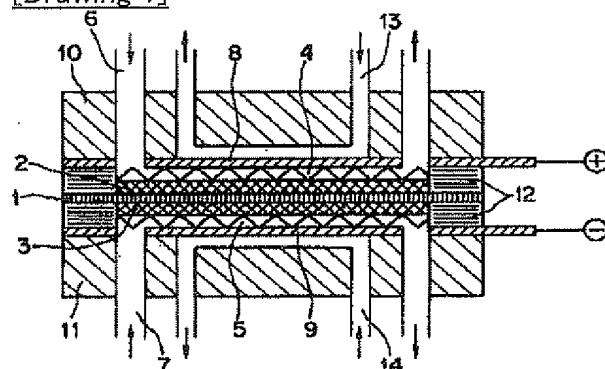
JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

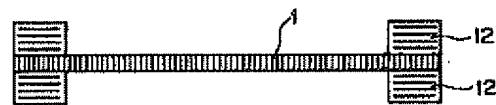
---

**DRAWINGS**

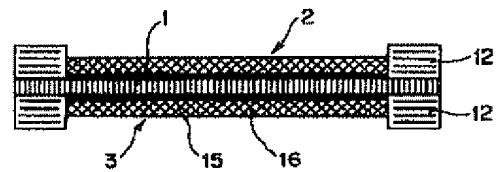
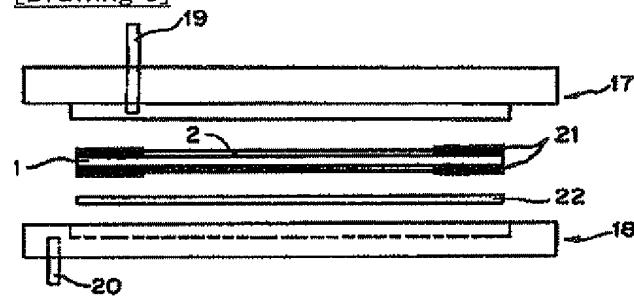
---

**[Drawing 1]****[Drawing 2]**

(a)



(b)

**[Drawing 3]**

---

[Translation done.]

---

JP 08-185875 A

This document discloses a fuel cell in which a pair of separators sandwiches an electrode assembly and are bonded via a bonding portion (Paragraphs [0019]-[0028], Figs 1 to 3).

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-185875

(43)公開日 平成8年(1996)7月16日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 1 M 8/02

識別記号

府内整理番号

F I

技術表示箇所

S

P

Y

8/10

審査請求 未請求 請求項の数4 FD (全 5 頁)

(21)出願番号

特願平6-339776

(22)出願日

平成6年(1994)12月28日

(71)出願人 000220262

東京瓦斯株式会社

東京都港区海岸1丁目5番20号

(72)発明者 関務

神奈川県横浜市磯子区汐見台3-3-3303  
-325

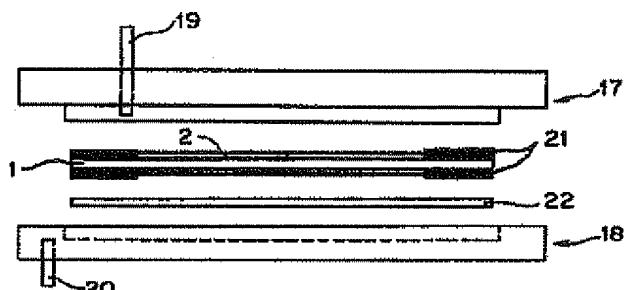
(74)代理人 弁理士 加茂裕邦

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池のシール方法

(57)【要約】

【構成】 固体高分子電解質膜にセパレータを接着剤により接合一体化するに当たり、この固体高分子電解質膜を乾燥させることなく、加圧下、温度100℃以上の湯温下においてプレスすることにより、固体高分子電解質膜を含水状態としたままで接合、一体化させることを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法。

【効果】 高分子電解質膜とセパレータが含水状態で接合されており、このため発電時における膜のストレスがないため、より安全な発電を行うことができる。また、電解質膜とセパレータとの間のシール、就中ガスシールを容易且つ確実にできることで、電解質膜の損傷を大幅に低減させ、燃料電池の安全性を向上させることができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜にセパレータを接着剤により接合し一体化するに当たり、この固体高分子電解質膜を乾燥させることなく、加圧下、温度100℃以上の湯温度下においてプレスすることにより、固体高分子電解質膜を含水状態としたままで接合一体化させることを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法。

【請求項2】 上記固体高分子電解質膜が、パーフルオロカーボンスルfonyl酸樹脂系の膜である請求項1記載の固体高分子型燃料電池のシール方法。

【請求項3】 上記セパレータが、カーボン製又は貴金属をコーティングしたステンレス鋼製等、酸性電解質に対し耐食性を有する導電性金属である請求項1又は2記載の固体高分子型燃料電池のシール方法。

【請求項4】 上記接着剤が、熱硬化性樹脂である請求項1、2又は3記載の固体高分子型燃料電池のシール方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池のシール方法に関し、より具体的には固体高分子型燃料電池の固体高分子電解質膜とセパレータとのガスシールを容易且つ確実にし、固体高分子型燃料電池の安全性を有効に向上させることができる固体高分子型燃料電池のシール方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 固体高分子型燃料電池はイオン伝導体すなわち電解質が固体で且つ高分子である点に特徴を有するものであるが、その固体高分子電解質としては具体的にはイオン交換樹脂等の膜が使用され、この高分子電解質膜を挟んで負極（アノード）及び正極（カソード）の両電極を配置し、例えば負極側に燃料としての水素ガスを、また正極側には酸素又は空気を供給して電気化学反応を起こさせることにより電気を発生させるものである。

【0003】 この装置には各種様のものがあるが、図1は、この固体高分子型燃料電池の原理ないしは一様を説明するための概略図である。図1中、1は高分子電解質膜、2はカソード電極（正極）、3はアノード電極（負極）であり、高分子電解質膜1は相対するこの正負両電極2、3間に配置されている。また4はカソード電極側集電体、5はアノード電極側集電体であり、それぞれ正負の電極2及び3に当接されている。このうちカソード電極側集電体4の電極2側には酸素又は空気供給用の溝が設けられ、同じくアノード電極側集電体5の電極3側には水素供給用の溝が設けられ、正極側集電体4の溝は酸素又は空気供給管6に、また負極側集電体5の溝は水素供給管7に連通している。

【0004】 また、8は正極側集電体4に当接して設けられたカソード端子板、9は負極側集電体5に当接して

設けられたアノード端子板であり、電池の作動中にこれらを通して電力が取り出される。10は上部枠体すなわち上部フレーム、11は下部枠体すなわち下部フレームであり、これら上下両枠体10、11により高分子電解質膜1からカソード端子板8及びアノード端子板9までの電池本体（この用語「電池本体」は、後述のとおり電極を電解質膜に当接し一体化したものとして使用している）を被って固定されている。

【0005】 これら上下両枠体10、11間には、高分子電解質膜1からカソード端子板8及びアノード端子板9までの電池本体の周縁部を囲ってパッキン（ガスケット）12が設けられ、これによってその電池本体の周縁部を密に固定してシールし、特に高分子電解質膜1及び正負両電極2、3に対してガスシールされている。なお図1中、13及び14は冷却水供給管であり、これらはそれぞれ上部枠体10及び下部枠体11の内面に設けられた溝（閉じた通路）に連通し、カソード端子板8の背面及びアノード端子板9の背面から間接的に冷却される。

【0006】 以上は、電池本体が単一の場合であるが、この電池本体を二つ以上積み重ねて構成することも行われる。この場合には二つ以上の各電池本体間にセパレータ（スペーサー）を介在させ、これにも適宜冷却水用の溝等を設ける必要はあるが、電池本体の周縁部（周辺部）を囲ってパッキンを設け、その電池本体の周縁部を密に固定してシールし、高分子電解質膜1及び正負両電極2、3に対してガスシールすること等を含めて、基本的には上述単一の電池本体の場合と同じである。この場合には、パッキン等の締め付けは、上下両枠体10、11に加え、上記セパレータをも介して行われる。

【0007】 前述単一の電池本体、またこの電池本体を二つ以上積み重ねて構成する場合にも、その周縁部（周辺部）を密に、特にガス密にシールする必要がある。そのシールの仕方としては、①上述のとおり高分子電解質膜の周囲にパッキンを介在させて密着させる、②Oリングを介在させ、これにより密着させる等の手法が用いられ、提案されている。

【0008】 しかし、これらの手法でその密着を確実にするためには、何れもそれらパッキン又はOリングを強く押圧する必要があるが、このためこれらが当接する高分子電解質膜自体を損傷するばかりでなく、前述電池本体に対しても必要以上の締め付けが行われてしまうことにもなり、また高分子電解質膜は、通常、温度や加湿の有無により伸縮する性質があり、これによりシール部に負担がかかりやすいため、上述①、②等の何れのシール手法をとるにしても、この点にも十分配慮する必要がある。

【0009】 本発明者は、以上の諸点に鑑み、その電池本体の周縁部を固定してシールし、高分子電解質膜1及び正負の両電極2、3に対してガスシールをするに当た

り、そのようなパッキンやOリングを介在させる手法における上記問題点を一挙に解決し、高分子電解質膜を軽く押さえるだけで十分にシールすることができ、またこれによって高分子電解質膜自体を損傷することのない等の優れた利点を有するシール法を先に開発し提案している（特願平6-309936号）。

【0010】上記開発、提案に係る発明では、固体高分子型燃料電池のシールを、固体高分子型燃料電池の高分子電解質膜とパッキン（ガスケット）、好ましくは予めサンドblastにより表面処理をして細かい凹凸を付したパッキンとを予め接着剤により接合して一体化することにより行うものであるが、図2(a)は、上記で得たパッキンを一体化した高分子電解質膜を示し、また図2(b)はそのパッキン一体化高分子電解質膜にガス拡散電極を接合した電池本体の構造を示したものである。

【0011】図2中、高分子電解質膜1及び正負両電極2、3の配置は図1の場合と同じであるが、上記で得た電極2、3は、例えば撥水化カーボンペーパーがガス拡散層1.5を構成し、また触媒粒子の堆積層が触媒層1.6を形成している。このため、両電極2、3は、ともに触媒層1.6側が高分子電解質膜面に当接するよう接合されており、これにより電解質膜とパッキンの間のガスシールを容易且つ確実にすることができる。またこれにより燃料電池の安全性を向上させることができるだけでなく、従来よりも膜を軽く押さえるだけで十分にシールすることができ、このため電解質膜の損傷を大幅に低減させることができるものである。

【0012】ところで、電池本体を二個以上積層して電池を構成する場合には、両電池本体間にセパレータを介在させ、その周辺部をシールする必要があるが、前述のとおりこのシールは、電池本体の周縁部（周辺部）を囲ってパッキンを設け、その電池本体の周縁部を密に固定してシールし、高分子電解質膜1及び正負両電極2、3に対してガスシールをすることが必要であり、このパッキン等の締め付けは、上下両枠体10、11に加え、上記セパレータをも介して行われる。

【0013】しかし、この場合、そのようにただパッキンやOリングを介して締め付けるだけではシールがどうしても不十分である。これを回避する一手法として、高分子電解質膜とパッキンとを予め一体化したものに、さらに接着剤によりセパレータを接着、一体化しておくのが望ましく、この手法としては、従来、例えばセパレータに接着剤を塗布し、これを乾燥した高分子電解質膜に当接させた後、温度100℃程度でのホットプレスにより接合していた。

【0014】しかしこの手法では、そのホットプレス時において、高分子電解質膜は、それ自体乾燥してしまっているため、これを図1のように燃料電池としてセットし、加湿をして起動させる時点では、高分子電解質膜が当初とは異なるサイズになってしまい、このため発電時

の膜の膨張による電池の破損という危険性を持ち、またホットプレス時における加熱による膜の変質にも問題があった。

#### 【0015】

【発明が解決しようとする課題】そこで本発明は、固体高分子型燃料電池の高分子電解質膜とセパレータとを、上述のようにその間にパッキン（ガスケット）を介在させることなく、両者を直かに接着剤により接合して一体化することによりシールを行うようにするようにし、その接着一体化に際して、高分子電解質膜を乾燥させることなく、そのシールをさらに有効且つ確実に行なうことができるようにしてなる固体高分子型燃料電池のシール方法を提供するものである。

#### 【0016】

【課題を解決するための手段】本発明は、固体高分子電解質膜にセパレータを接着剤により接合一体化するに当たり、この固体高分子電解質膜を乾燥させることなく、加圧下、温度100℃以上の湯温度においてプレスすることにより、固体高分子電解質膜を含水状態としたままで接合一体化させることを特徴とする固体高分子型燃料電池のシール方法を提供する。

【0017】このように、本発明においては、高分子電解質膜にセパレータを接着剤により接合一体化するが、上記セパレータの材質としては、好ましくはカーボン製や貴金属をコーティングしたステンレス鋼板等、酸性電解質に対し耐食性を有する金属の板等を使用することができる。また、上記接着剤としては、セパレータとパッキンとを密に接着し、ガスシールできるものであれば使用できるが、常温では液状で、上記温度100℃以上の湯温度において硬化し、接着させ得るものを使用する。この例としては、好ましくはフェノール樹脂、アミノ樹脂、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂からなり、これらの温度特性を備えた接着剤ないしはそれら温度特性を備えるよう調製された接着剤を挙げることができる。

【0018】また、上記高分子電解質膜としては、その種類如何を問わず何れも適用できるが、その優れた特性から好ましくはパーカルオロカーボンスルfonyl酸系の樹脂膜を使用することができる。この膜はその優れた電気的特性に加え、化学的にも物理的にもきわめて安定であり、機械的強度も大きく、厚さ5.0～20.0μm程度の膜として使用され、この膜厚でも単位面積当りの電気抵抗は0.1～0.5Ω程度で電池の内部抵抗の主な原因とはなり得ないほど小さい等、優れた特性を備える材料として知られているものである。

【0019】前述のとおり、本発明においては、固体高分子電解質膜にセパレータを接合するに際して、この固体高分子電解質膜を乾燥させることなく、加圧下、温度100℃以上の湯温度においてプレスすることにより、固体高分子電解質膜を含水状態としたままで接合一体化させることを特徴とするものであるが、図3

はこれを実施する態様を原理的に示した模式図である。

【0020】図3中、17は上金型、18は下金型、19、20はスチーム導入管であり、このスチーム導入管19、20を介して上下両金型内に水蒸気が供給される。また21は、高分子電解質膜1に予め塗布された接着剤であり、22はその接着剤21に接合一体化しようとするセパレータである。なお接着剤21は、予めセパレータ22に対して塗布しておくようにしてもよく、また高分子電解質膜1とセパレータ22との双方に塗布しておくようにしても差し支えない。

【0021】この一体化処理に際してはその高分子電解質膜1の面及び／又はセパレータ22の面に接着剤を塗布し、次いで図示のとおり、これらを上下金型17、18間にセットし、両金型17、18の一方又は双方から圧力をかけながら上記水蒸気により間接的に加熱する。なお、図3においては、セパレータは高分子電解質膜1の下に1個（図中、22）だけ示しているが、その上面にも配置し、一対のセパレータを同時に接合一体化することもできる。また複数の高分子電解質膜で電池を構成する場合には、セパレータをその複数の高分子電解質膜の間及び／又はその最上部面（及び最下部面）にも同時に接合一体化することもできることは勿論である。

【0022】また、上記水蒸気は、その操作時に凝縮して湯となり、その凝縮熱を利用するようによることにより、その加熱温度として湯の温度すなわち100°Cないしはこの温度を大幅に超えることなく維持することができるものである。また、本発明では、その加熱源として、上記水蒸気に代えて温度100°C又はその近傍に加熱した湯を供給するようによることも差し支えなく、この場合には上記スチーム導入管22、23を湯供給用導管として構成する。本発明においては、これにより高分子電解質膜を乾燥させることなく、濡れた状態すなわち含水状態の膜としたままでセパレータとの接合を完結させることができるものである。

【0023】この点、従来の方法では、その膜を乾燥させた後に接合一体化していたため、その高分子電解質膜が発電時とは異なるサイズになってしまふこととなり、このため発電時の膜の膨張による電池の破損という危険性を持ち、また加熱による膜の変質にも問題があった。本発明によれば、高分子電解質膜を乾燥させることなく含水状態で接合一体化することにより、それら欠点を一举に解決し得たものであり、これにより発電時における膜のストレスもないため、より安全な発電を行うことを可能としたものである。

【0024】次に、本発明に係るシール方法の一態様についてその概略を述べると、（1）まず、カーボン製又は貴金属をコーティングしたステンレス鋼製等のセパレータの接着面を洗浄し、その洗浄面に加熱硬化型接着性樹脂（熱硬化性樹脂、例えばTSE322、東芝シリコーン社製、商品名）を塗る。（2）高分子電解質膜に充

分含水させた後、セパレータの接着面が接するようにして、図3に示すようなプレス用の上下金型内に入れる。

（3）これを上下両金型により挟み、圧力約100～200kg/cm<sup>2</sup>程度でプレスし、温度100°Cに加熱した水（湯）を金型内に導入して、膜とセパレータを接合する。（4）こうして得られた電池本体を図1のように組み立て、セットし燃料電池を得る。

#### 【0025】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明するが、本発明

10 がこの実施例に限定されるものではないことは勿論である。①まず、高分子電解質膜としては、厚さ80μmのNAFION-117膜（パーカルオロカーボンスルホン酸樹脂膜、DuPont社製、商品名）を使用し、その膜の両面にガス拡散電極を接合した。このガス拡散電極は、気孔率80%、厚さ0.4mmのカーボンペーパーをテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体のディスページョンで撥水化したカーボンペーパー上に、パーカルオロカーボンスルホン酸樹脂のアルコール溶液でコーティングしてなる白金50重量%を担持させた触媒粒子（担体：カーボン）にポリテトラフルオロエチレンのディスページョンを加えた懸濁液を堆積させて作製したものである。

【0026】②一方、セパレータとして予め白金でコーティングしたテンレス鋼製のセパレータを用い、その接着面を洗浄し、その洗浄面にTSE322（熱硬化性樹脂、東芝シリコーン社製、商品名）を塗布した。③次いで上記NAFION-117膜を充分に含水させた後、このNAFION-117膜に予め接合一体化されたパッキン面に、上記セパレータの接着面が当接するようにして、図3に示すようなプレス用の上下金型内に入れられた。④これを上下両金型により挟み、圧力150kg/cm<sup>2</sup>でプレスし、温度100°Cに加熱した湯を金型内に導入して、膜とセパレータを上記パッキンを介して接合させ、高分子電解質膜-セパレータ接合体を得た。

【0027】⑤その後、常法により、上記高分子電解質膜-セパレータ接合体に集電体、端子板等を密着させ、水素及び酸素の出入口等を設置して、図1のように固体高分子型燃料電池としてセットし、その電極特性及び電池としての性能の変化を測定した。一方、比較例用電池として、高分子電解質膜にセパレータを接合するに際して、本発明のように高分子電解質膜を含水状態として接合するのではなく、従来のように乾燥状態で接合させた以外は、すべて実施例の場合と同様にして電池を作製した。

【0028】両者は、ほぼ同等の電池性能を示したが、従来法では、膜の破損等が発電中に30%の割合で生じたのに対して、実施例電池では膜破損等のトラブルは生じなかった。この点、同じ試験を10回実施しても全く同様であった。またシール後の電解質膜面を目視により

観察たところ、本実施例によものには、その解体後でも膜の損傷は認められなかった。

【0029】

【発明の効果】本発明に係るシール方法によれば、セパレータに対して電解質膜が含水状態で接合されているため、発電時における膜のストレスもなく、これによってより安全な発電を行うことができる。また、電解質膜とセパレータとの間のシール、就中ガスシールを容易且つ確実にすことができ、電解質膜の損傷を大幅に低減させ、燃料電池の安全性を向上させることができる。

10

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池の一態様を説明するための概略図。

【図2】パッキンを一体化した高分子電解質膜及びこれがガス拡散電極を接合した燃料電池本体の構造を示す図。

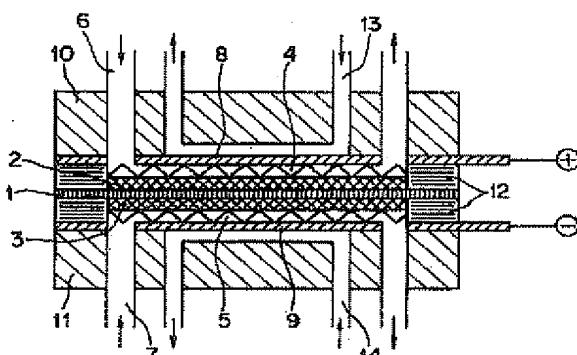
【図3】本発明方法の実施に用いる装置の模式図。

【符号の説明】

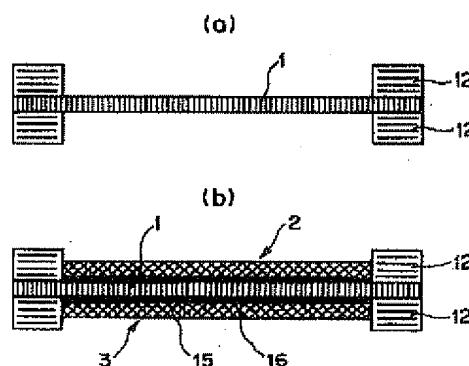
- \* 1 高分子電解質膜
- 2 カソード電極（正極）
- 3 アノード電極（負極）
- 4、5 集電体
- 6 空気供給管
- 7 水素供給管
- 8、9 端子板
- 10 上部枠体（上部フレーム）
- 11 下部枠体（下部フレーム）
- 12 パッキン
- 13、14 冷却水供給管
- 15 ガス拡散層
- 16 触媒層
- 17、18 金型
- 19、20 スチーム又は湯の導入管
- 21 着剤
- 22 セパレータ

\*

【図1】



【図2】



【図3】

